

Gd 광이온 분광용 3-색 파장가변 레이저 시스템 파장 제어 연구

Study on the Wavelength Control of the 3-Color Tunable Laser System for the Photo-ionization Spectroscopy of Gd

정의창, 임권, 박성희, 차병현, 김덕현, 송규석, 차형기

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

Gd 금속의 3-색 광이온화에 사용되는 레이저 시스템의 각 파장을 실시간으로 제어하는 기술에 대해 연구하였다. Gd 원자의 전이선 중심에 일치하는 레이저 파장을 찾기 위해 광검류 신호를 측정하여 결과를 정리하였다. 특정 핵종의 광이온화를 위해 질량 스펙트럼을 측정하고, 이 신호를 레이저 시스템으로 되돌려 전이선 중심에서 미세하게 변화된 레이저 파장을 안정화시킨 결과를 설명하였다.

Abstract

Real-time control of laser wavelengths for 3-color photoionization of Gd was performed. The optogalvanic signals were measured to find the laser wavelengths corresponding to the center of the atomic transition lines. Time of flight mass spectra were measured to detect photoion of the target nuclide. This ion signals were used to stabilize the slightly detuned wavelengths from the center of the atomic transition lines.

1. 서론

란탄족 원소의 핵종은 다양한 분야에서 응용 가능성이 크다. 따라서 이러한 핵종의 양 및 성분비 측정이 필요하며, 이와 연관된 각종 분석기술이 개발되고 있다. 레이저 광이온화 방법을 이용한 TOF(Time Of Flight) 질량 분석장치는 이러한 측정에 적합하며, 비교적 쉽게 실험실에서 제작할 수 있는 계측기이다.

Gd 금속의 일곱 개 동위원소 중에서 성분비를 인위적으로 변화시킨 네 개의 원소가 최근 들어 핵 물리 및 화학 분야에서 주목을 받고 있다. ^{152}Gd 는 의료용으로 사용되는 ^{153}Gd 의 원료로, ^{155}Gd 와 ^{157}Gd 는 장 주기 핵연료의 개량형 가연성 독 물질 재료로, ^{160}Gd 는 핵 반응 과정에서 발생하는 중성미자 검출기 재료로 각각 사용될 수 있기 때문이다[1-5].

이 논문에서는 ^{160}Gd 원소의 광이온화 연구에 사용된 TOF 질량 분석장치 중에서 광이온을 발생시키는 3-색 레이저 시스템의 파장 제어장치 및 그 특성에 대해 보고한다. 논문의 구성은 다음과 같다. 첫째, Gd 원자의 광이온화를 위해 선택한 세 개의 전이선(transition line)과 각 전이선의 중심에 일치하는 가시광선 레이저빔의 세 파장을 찾기 위해 광검류 신호(Optogalvanic Signal; OG)를 측정된 결과를 설명한다. 둘째, ^{160}Gd 원소만을 광이온으로 만들기 위해 질량 스펙트럼을 관측하면서 전이선 중심 파장에서 미세하게 변화된 세 파장의 최적화된 위치를 찾은 결과를 설명한다. 셋째, 질량 스펙트럼 신호를 레이저 발진기로 되돌려 미세하게 변화된 최적 위치에서 레이저 파장을 안정적으로 유지시킨 결과에 대해 설명한다.

2. 실험장치

그림 1에는 광이온화를 위한 3-색 레이저빔의 구성 및 정렬 상태를 나타내었다. 중성원자를 광이온으로 만들기 위해 세 대의 파장가변 색소 레이저빔을 여러 종류의 광학부품을 사용하여 일직선으로 정렬하였다. 정렬된 레이저빔은 TOF 질량 분석장치와 OG 신호를 검출하기 위한 방진관으로 입사된다.

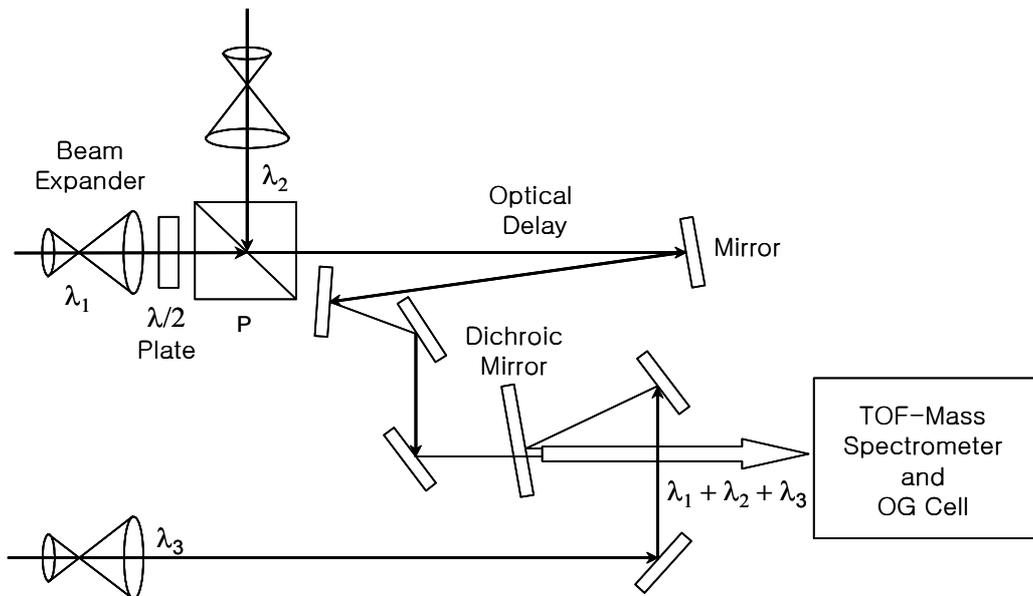


그림 1. 3-색 파장가변 레이저빔 구성 및 정렬.

그림 2에 제작된 질량 분석장치의 내부 구조를 보였다. 이온화 영역에서 레이저빔에 의해 발생된 이온들은 원자증기와 동일한 속도분포를 가지고 있고 그 분포가 클수록 질량 분해능이 저하된다. 따라서 속도분포를 줄이기 위해 원자증기 발생기 다음에 핀 홀을 설치하였다. 세 개의 전극을 설치하였고 1차 전극에는 2500-4000 V, 2차 전극에는 2000-3500 V 범위의 전압이 가해진다. 3차 전극은 접지 전극이다. 이들 전극들은 스테인리스 스틸 판을 두 개 겹치고, 그 사이에 스테인리스 스틸 그물코(mesh)를 끼워 만들었다. 각 전극의 크기는 길이가 40 mm인 정사각형 모양이며, 이온이 통과하는 그물코의 지름은 10 mm이다. 대부분의 광이온이 이온검출기에 도달할 수 있도록 편향(deflection)판을 두 쌍 설치하여 이온검출기와 평행한 평면상에서 2차원적으로 이온의 궤적을 제어하였다. 편향판에는 각각 0-200 V 범위의 전압을 인가하여 이온검출 신호의 크기와 질량 분해능을 최적화시켰다. 이온이 검출기 방향으로 비행하는 도중에 퍼지지 않고 집속될 수 있도록 세 개의 원통으로 구성된 이온 광학렌즈용 전극을 설치하였다. 세 개의 전극에 인가되는 전압의 크기에 따라 이온빔의 집속 정도가 변하며, 이는 질량 분해능 및 이온신호 크기에 영향을 준다. 이온검출기로는 이득이 1×10^7 인 MCP(Micro-Channel Plate)를 사용하였고, 1900-3000 V 범위의 전압을 인가하였다.

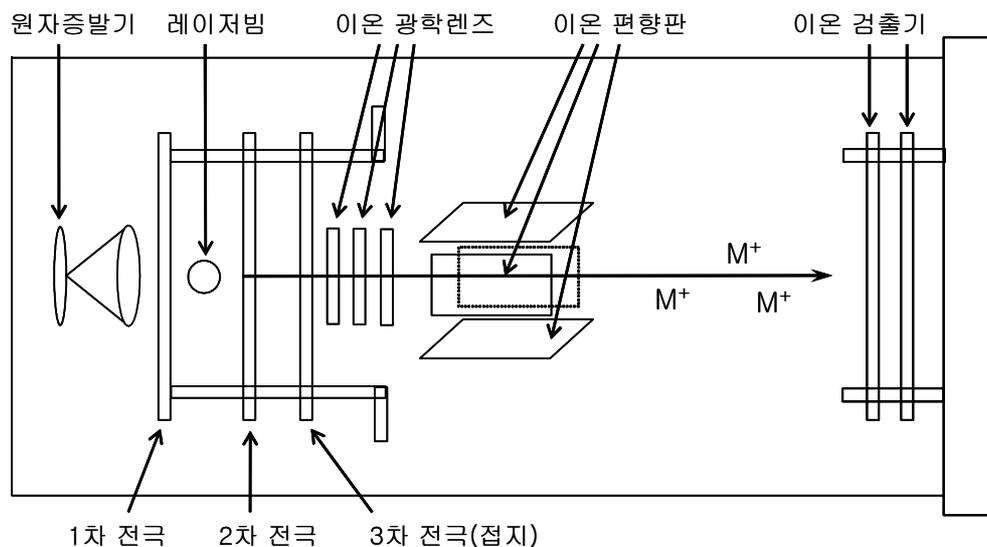


그림 2. TOF 질량 분석장치의 내부 구조.

질량 분석장치를 통과한 레이저빔은 다시 속이 빈 음극 방전관(hollow-cathode discharge tube)을 통과하도록 정렬되었다. 이 방전관의 음극은 안지름이 2 mm, 길이가 20 mm인 Gd 금속으로 제작되었다. 양극과 음극 사이에 수 백 볼트의 전압을 인가해 방전이 시작되면 완충기체 역할을 하는 Ar 가스의 양이온이 음극으로 가속되면서 sputtering 과정을 통해 중성의 Gd 원자가 포함된 방전 플라즈마를 발생시킨다. Gd 원자의 전이선에 맞는 레이저빔이 입사되면 흡수 과정을 통해 준위밀도에 변화가 생기며, 이로 인해 방전 플라

즈마의 임피던스에 변화가 야기된다. 이러한 임피던스 변화는 양극과 음극 사이의 방전 전류의 변화로 측정되며, 이 신호를 OG 신호라고 한다.

3. 결과 및 논의

3-1. Gd 원자의 에너지 준위

그림 3은 Gd 원자의 광이온화 경로를 에너지 준위로 나타낸 것이다[6]. 그림 3(a)에 표시한 것과 같이 Gd 원자의 이온화 에너지 준위는 $49603(\pm 5) \text{ cm}^{-1}$ 이며, 광이온화를 위해 선택한 에너지 준위는 $0 \rightarrow 17380.8 \rightarrow 34586.7 \rightarrow 50624.7 \text{ cm}^{-1}$ 의 순서이고, 이에 해당되는 각 색소레이저의 파장은 $575.188 \rightarrow 581.035 \rightarrow 623.347 \text{ nm}$ 의 순서이다.

각 전이선에 해당하는 색소 레이저의 파장을 확인하기 위해서 파장계(wavemeter)로 파장을 측정하는 방법과 OG 신호 및 질량 스펙트럼을 측정하는 방법을 순차적으로 사용하였다. 실험에 사용한 파장계(Burleigh Instruments, Inc., Model WA-4500)에는 두 개의 에탈론이 설치되어 있으며, 측정된 파장의 정밀도는 $\pm 0.001 \text{ nm}$ 이고, 1.5-9.0 GHz 범위의 레이저 선폭을 측정할 수 있다.

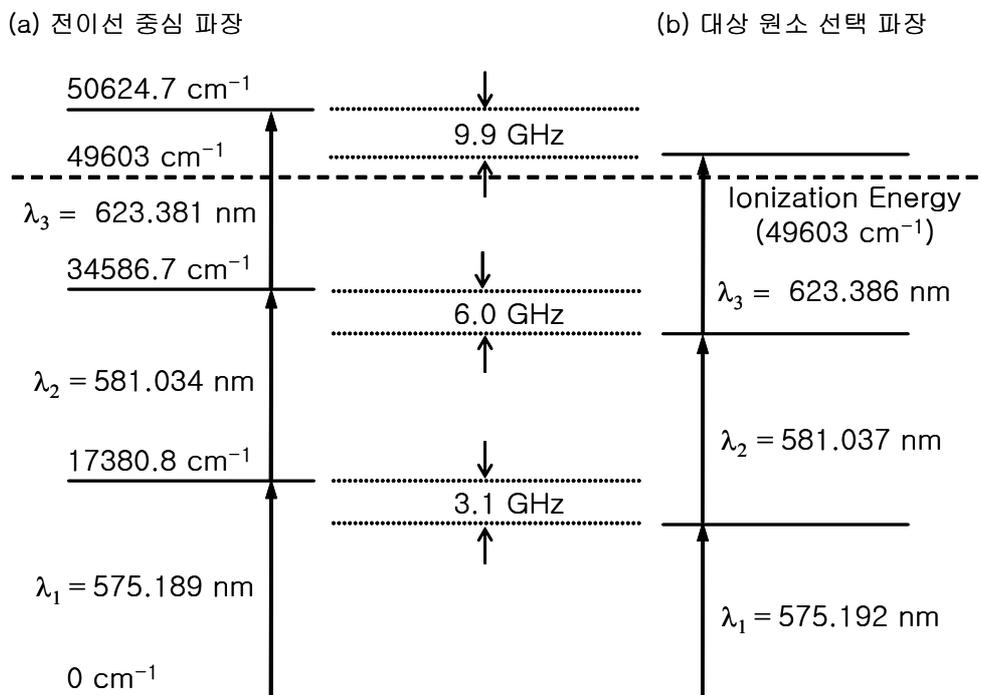


그림 3. 광이온화에 사용된 Gd 원자의 에너지 준위.

3-2. OG 신호

그림 4는 방전전류가 30 mA인 조건에서 오실로스코프로 측정된 OG 신호의 파형이다. 오실로스코프의 입력저항으로 AC 100 MΩ을 사용하면 수십 μs의 느린 파형을 측정할 수 있고, DC 50 Ω의 입력저항을 사용하면 수십 ns의 빠른 파형을 측정할 수 있다. 느린 파형은 레이저빔에 의해 원자들이 위 준위로 들뜬 경우에 준위분포의 변화로 인한 임피던스 변화를 측정하는 것에 해당되며, 빠른 신호는 레이저빔에 의해 발생된 광이온 전류를 직접적으로 측정하는 것에 해당된다. 그림 4에는 먼저 λ₁만 입사시켰을 때 광검류 신호가 가장 크게 나타나는 레이저 파장(λ₁=575.189 nm)을 파장계로 읽은 후, λ₁+λ₂의 두 파장을 동시에 입사시켰을 때 가장 큰 신호가 측정되는 레이저 파장(λ₂=581.034 nm)을 파장계로 읽고, 이어 λ₁+λ₂+λ₃의 세 파장을 동시에 입사시켜 가장 큰 신호를 주는 레이저 파장(λ₃=623.381 nm)을 읽은 결과를 보였다.

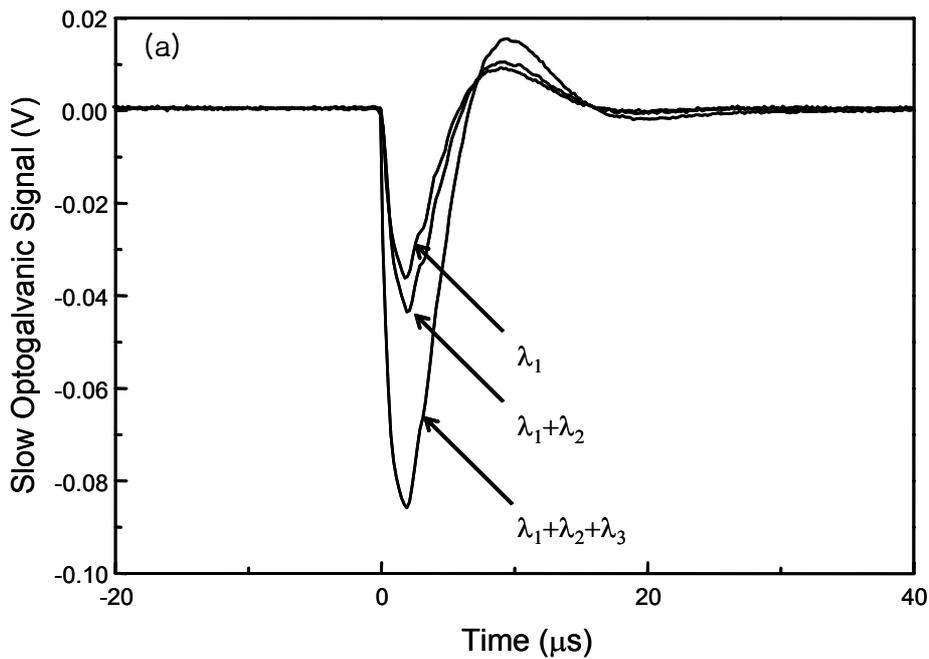


그림 4. 전이선 중심 파장에서 측정된 OG 신호.

표 1에는 각 전이선의 분광상수와 중심파장 및 OG 신호가 최대인 파장 위치를 파장계로 측정된 값을 비교하였다. 그림 4에 보인 광검류 신호의 크기는 정성적으로 표 1에서 보인 각 전이선의 전이확률 크기에 부합되는 결과로 판단된다. 두 번째 파장인 581.034 nm의 경우, 전이확률이 다른 두 파장에 비해 작으므로 575.189 nm와 581.034 nm가 동시에 입사되었을 때의 광검류 신호의 증가 정도도 매우 미약하다.

이와 같은 방법으로 측정된 파장은 표 1에 정리한 것과 같이 파장 1, 2의 경우에는 파장계의 오차범위 내에서 측정파장과 에너지 준위에서 계산한 중심파장이 일치하고 있으나, 파장 3의 경우에는 두 파장이 0.034 nm의 차이를 보이고 있다. 이 차이는 Gd 원자의 동위원소 이동(isotope shift)과 관계가 있는 것으로 판단된다. 표에서 보인 중심파장이 ^{156}Gd 원소의 에너지 준위를 나타낸 것임에 비해 방전관에서 측정된 광검류 신호에서는 각 동위원소가 구분되지 않고 섞여있기 때문이다.

표 1. 각 전이선의 분광 상수 및 레이저 파장.

	파장 1(λ_1)	파장 2(λ_2)	파장 3(λ_3)
전이선 준위 (cm^{-1})	0→17380.8	17380.8→34586.7	34586.7→50624.7
전이확률 ($\times 10^8 \text{ sec}^{-1}$)	0.031	0.007	0.051
위 준위 수명 (ns)	597 ± 60	820 ± 150	0.035 ± 0.004
중심파장 (nm)	575.188	581.035	623.347
측정파장 (nm)	575.189 ± 0.001	581.034 ± 0.001	623.381 ± 0.001

3-3. 질량 스펙트럼 및 파장 제어장치

그림 5에 색소 레이저빔의 파장 변화에 따라 달라지는 TOF 질량 스펙트럼을 보였다. 그림 5(a)는 색소 레이저빔의 세 파장이 각각 표 1에 정리한 측정파장(575.189 nm → 581.034 nm → 623.381 nm)에 맞추어져 있을 경우의 질량 스펙트럼이다. 그림 5(b)는 그림 3(b)에서 보인 것과 같이 각각의 파장을 장파장 방향으로 0.0034 nm(~3.1 GHz), 0.0033 nm(~2.9 GHz), 0.005 nm(~3.9 GHz) 이동시켰을 때 측정된 질량 스펙트럼을 나타낸 것이다. 그림 5(b)의 질량 스펙트럼은 대상 원소인 ^{160}Gd 가 선택적으로 광이온이 되었다는 것을 뜻하며, 그 성분비는 90% 이상이다.

그림 5(b)에 보인 것과 같이 선택적으로 광이온이 된 대상 핵종의 질량 스펙트럼은 레이저 선폭 및 레이저 파장의 이동 정도에 따라서 성분비는 물론 신호의 크기도 달라진다. 실험에 사용된 색소 레이저의 선폭 범위는 1.8-3.0 GHz 정도이며, 장시간 동작시킬 때의 평균 선폭은 약 2.5 GHz이다. 이러한 레이저 선폭 조건에서 최대 성분비를 얻기 위한 파장 이동 조건과 최대 신호 크기를 얻기 위한 파장 이동 조건을 조사한 결과를 표 2에 정리하였다.

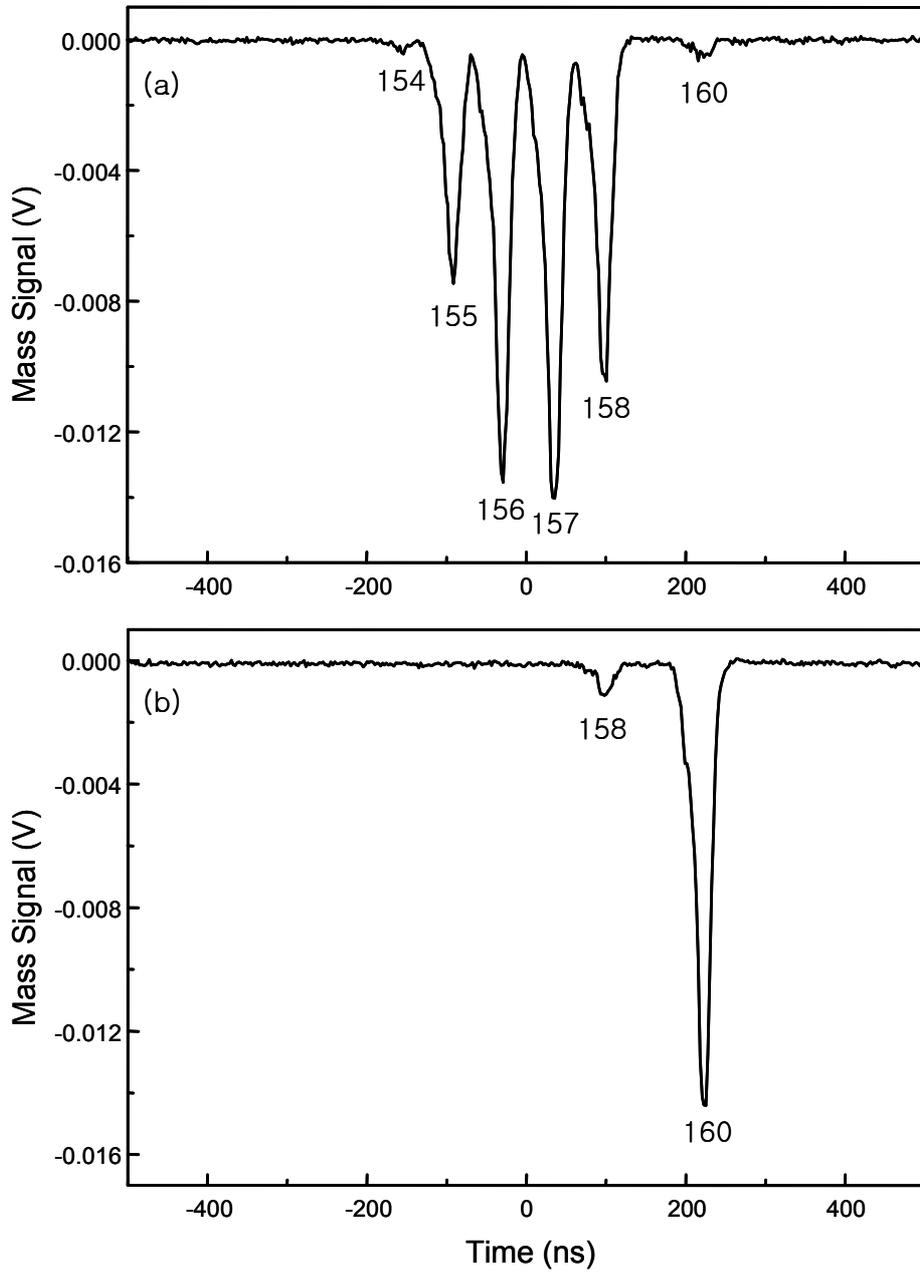


그림 5. Gd 이온의 질량 스펙트럼. (a) 전이선 중심과장에서의 질량 스펙트럼, (b) ^{160}Gd 원소만을 선택하여 광이온으로 만든 경우의 질량 스펙트럼. 그림에서 아라비아 숫자는 각각의 동위원소에 해당되는 숫자를 뜻한다.

표 2. 최대 성분비와 최대 신호 크기를 얻기 위한 파장 조건.

	레이저 선폭	파장 이동 (장파장 방향)	¹⁶⁰ Gd 성분비
최대 성분비 조건	$\Delta\nu_1 : 2.0 \text{ GHz}$ $\Delta\nu_2 : 1.8 \text{ GHz}$ $\Delta\nu_3 : 1.8 \text{ GHz}$	$\Delta\lambda_1 : 0.0034 \text{ nm}$ (3.1 GHz) $\Delta\lambda_2 : 0.0033 \text{ nm}$ (2.9 GHz) $\Delta\lambda_3 : 0.005 \text{ nm}$ (3.9 GHz)	~92%
최대 신호 조건	$\Delta\nu_1 : 1.9 \text{ GHz}$ $\Delta\nu_2 : 2.9 \text{ GHz}$ $\Delta\nu_3 : 2.5 \text{ GHz}$	$\Delta\lambda_1 : 0.0034 \text{ nm}$ (3.1 GHz) $\Delta\lambda_2 : 0.0030 \text{ nm}$ (2.7 GHz) $\Delta\lambda_3 : 0.0002 \text{ nm}$ (0.2 GHz)	~75%

표 2의 결과는 전이선 중심 파장을 기준으로 λ_1 , λ_2 의 위치를 각각 약 3 GHz 정도 이동시킨 조건에서 λ_3 의 위치를 이동시키면 대상 핵종의 성분비가 증가하며, λ_3 의 위치를 이동시키지 않으면 성분비는 떨어지지만 신호의 크기가 최대임을 보이고 있다.

이상에서 설명한 것과 같이 최적화된 광이온화 레이저빔의 세 파장은 장시간 동작시키는 동안 변하지 않고 안정해야 한다. 이를 위해 세 레이저빔의 파장을 동시에 능동적으로 제어할 수 있는 장치를 구성하였다. 그림 5(b)에서 보인 대상 원소의 이온 신호는 세 레이저 파장 중에서 한 파장이라도 변화하면 그 크기가 달라진다. 따라서 이온 신호의 적분값을 지속적으로 모니터링하면서 그 크기가 달라질 때 레이저 발진기의 파장 변화 소자를 제어하는 원리를 이용하였다.

그림 6에 파장가변 레이저의 발진기 구조를 나타내었다. 발진기의 끝 부분에 위치한 회전 가능한 거울(그림에서 tuning mirror로 표시)이 파장 변화 소자 역할을 하며, 모니터링하고 있는 이온 신호의 크기가 변화하면 이 거울을 회전시켜 이온 신호가 원래의 크기로 되돌아 갈 수 있도록 피드백 장치를 구성하였다. 그림 7에는 이러한 피드백 장치의 성능을 보였다. 첫 번째 레이저 파장인 575.192 nm에 장시간 고정되어 있는 결과를 보이고 있으며, 파장이 변화할 경우에 능동적 제어에 의해 다시 원래의 파장 위치로 되돌아가는 과정을 원 부호로 표시하였다.

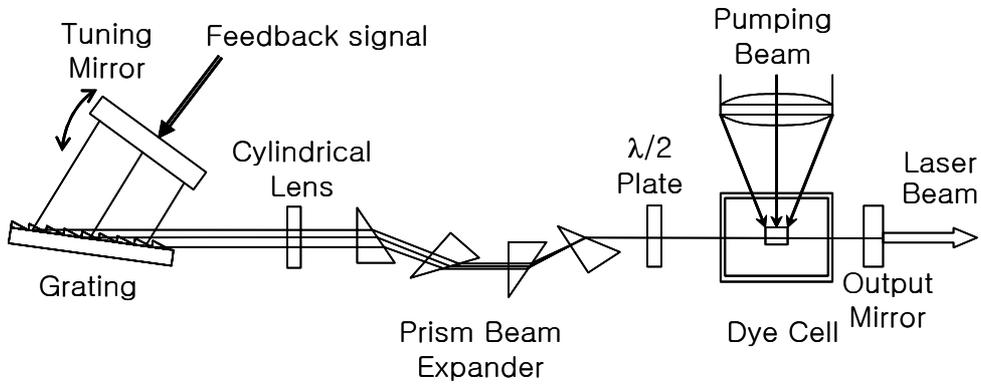


그림 6. 파장가변 색소 레이저 발진기 구조. 그림에서 tuning mirror로 표시된 거울이 회전하면 레이저빔의 파장이 변한다. 질량 스펙트럼을 나타내는 이온 신호의 크기를 모니터링 하는 것과 함과 동시에 피드백 장치를 구성하여 레이저빔의 파장을 안정화시킬 수 있다.

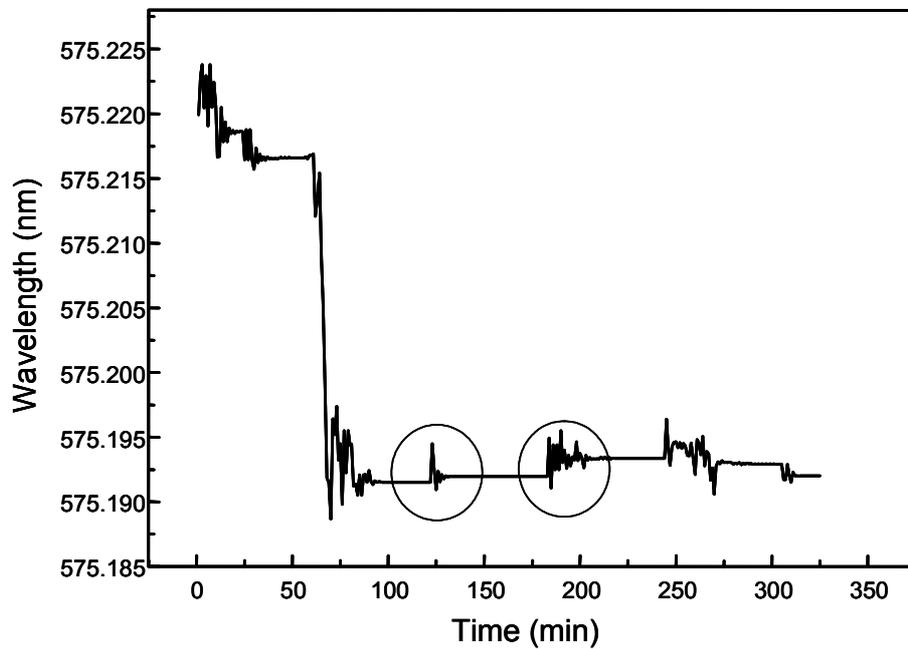


그림 7. 피드백을 통한 파장 안정화 예(575.192 nm).

4. 결론

Gd 금속의 3-색 광이온화 연구를 수행하였다. 광이온화에 필요한 각 원자 전이선의 중심 파장에 일치하는 레이저 파장을 찾기 위해 OG 신호를 측정하여 결과를 정리하였다. 광이온화용 대상 원소로 ^{160}Gd 를 선택하여 최대 성분비와 최대 이온 신호를 보이는 미세한 파장 변화 조건을 조사하여 표 2에 정리하였다. 광이온화에 사용된 세 레이저 파장을 실시간으로 제어하는 기술을 연구하였고, 그 결과로 레이저 파장을 장시간 동안 안정화시킨 결과를 제시하였다.

5. 참고문헌

- [1] J.-P.A. Renier and M.L. Grossbeck, ORNL/TM-2001/238.
- [2] M.I.K. Santala, A.S. Daavittila, H.M. Lauranto, R.R.E. Salomaa: *Appl. Phys. B* **64**, 339 (1997).
- [3] Y. Izawa, C. Lim, H. Ohara, H. Niki, M. Hashida: *J. Nucl. Sci. Technol.* **39**, 426 (2002)
- [4] M. Cribier: DAPNIA/SPP 99-09 (1999).
- [5] R.S. Raghavan: *Phys. Rev. Lett.* **19**, 3618 (1997).
- [6] C. Haynam, B. Comaskey, J. Conway, J. Eggert, J. Glaser, E. Ng, J. Paisner, R. Solarz, E. Worden: in *Laser Isotope Separation*, ed. By J.A. Paisner, *Proc. SPIE* **1859**, 24 (1993).